

DISS. ETH NO. 23962

Scanning Magnetometry with NV Centers in Diamond

A thesis submitted to attain the degree of
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH
(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by

Kevin Kai Chang

B.S. in Material Science and Engineering, University of Illinois
Urbana-Champaign

B.S. in Chemistry, University of Illinois Urbana-Champaign

M.Sc. in Chemistry, Massachusetts Institute of Technology

born on 17.05.1987

citizen of USA

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Christian Degen, examiner

Prof. Dr. Pietro Gambardella, co-examiner

2016

Abstract

Visualization of nanoscale magnetic features is important in many areas of nanoscale science and technology. Such features appear in many different systems, including ferromagnetic structures such as magnetic domains, particles, and junctions. Many important magnetic materials and phases such as skyrmions, ferroelectrics, topological insulators, and complex oxides also have magnetic features at the nanometer scale. Furthermore, in addition to stray fields from magnetic materials and phases, moving charges produce Oersted magnetic fields that can provide insight into mesoscopic electron transport in semiconductor physics, integrated circuits, and thin photoactive films. Finally, the magnetism of nuclear spins can be exploited in the context of magnetic resonance imaging. Direct detection of magnetic fields with nanometer resolution is, however, challenging as current state-of-the-art techniques have limited magnetic field sensitivity, spatial resolution, or incompatibility with samples.

In this work, the nitrogen vacancy (NV) center in diamond is used as a highly sensitive probe to detect magnetic fields with very high spatial resolution. The NV center is a fluorescent defect in diamond with unique magneto-optic effects. Its spin state is coupled to its luminescence allowing for the detection of local magnetic field by the Zeeman Effect with simple luminescence measurements. It is an ideal probe for nanoscale magnetic imaging as it is atomic in size. Furthermore, the NV center is also stable in a wide range of temperatures, photostable, and non-toxic, making it a versatile probe in many applications.

This thesis reports on the construction of a scanning NV magnetometer, fabrication of high-quality diamond probes with single NV centers implanted in the tip, and application of the technique to magnetic nanoparticle imaging and current imaging in nanoscale conductor networks:

In a first effort, a scanning NV magnetometer was built. The NV magnetometer consisted of four major components: an atomic force microscope (AFM) to position the NV center in 3-dimensions, a confocal microscope to optically address and readout the NV spin state, a microwave installation to control the NV center, and finally a 3-dimension magnet stage to apply bias magnetic fields. All of these components were homebuilt, including the control software.

A second effort included the fabrication of NV probes. A first generation of probes were produced by attaching single nanodiamond crystals hosting single NV center to the apex of commercially available AFM cantilevers. These probes have typical magnetic

field sensitivity of $\sim 10 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$ and spatial resolution of 20–100 nm. To improve the reliability, magnetic field sensitivity, and spatial resolution, a second generation of probes etched from single-crystal chemical vapor deposition (CVD) grown diamond were fabricated. NV centers were implanted by ion implantation with a depth of 5–10 nm from the tip of diamond pillars. With these carefully engineered probes, magnetic field sensitivities down to $10 \text{ nT}/\sqrt{\text{Hz}}$ are possible.

Nanoscale magnetic imaging was demonstrated by visualizing magnetic features of FeCo nanoparticles and nanorods. Different measurement protocols with different sensitivity and frequency detection range were conceived. Using the cantilever motion in the z-axis, 3-dimensional images of a magnetic tip were taken.

The main result of this thesis is the non-invasive magnetic imaging of current density in two-dimensional conductor networks including metallic nanowires and carbon nanotubes. Two-dimensional magnetic field images at a fixed height above the conductors were taken. The magnetic field images could be converted to current density images using an inverse filter technique. DC currents down to a few μA above a baseline current density of $2 \times 10^4 \text{ A cm}^{-2}$ with resolution of 22 nm were measured.

Zusammenfassung

Die Visualisierung von magnetischen Strukturen mit räumlicher Auflösung im Bereich der Nanoskala ist eine wichtige Methode für die Nanowissenschaften und für nanotechnologische Anwendungen. Strukturen dieser Art treten in verschiedensten Systemen wie beispielsweise ferromagnetischen Merkmalen also magnetischer Domänen oder Partikeln sowie Verbindungen auf. Viele wichtige magnetische Materialien und Phasen, wie Skyrmionen, Ferroelektrika, topologische Isolatoren und komplexe Oxide haben ebenfalls Features auf der Nanometerskala. Ausserdem erzeugen bewegte Ladungen Oersted-Magnetfelder, welche Einsichten in mesoskopische Elektronentransportphänomene im Bereich der Halbleiterphysik, der integrierten Schaltkreise oder der dünnen photoaktiven Schichten liefern können. Ausserdem lässt sich das Magnetfeld von Kernspins zur Bildgebung im Rahmen der Magnetresonanztomographie (MRT) einsetzen. Die direkte Detektion von magnetischen Feldern mit räumlicher Auflösung im Bereich von Nanometern ist jedoch anspruchsvoll, da die Magnetfeldsensitivität und Ortsauflösung aktuell verfügbarer Methoden nicht ausreichend ist, oder die Methoden nicht kompatibel mit den zu untersuchenden Proben sind.

In dieser Arbeit wird das Stickstoff-Fehlstellen (NV) Zentrum in Diamant als hochsensitiver Magnetfeldsensor genutzt, um magnetische Felder mit sehr hoher Ortsauflösung zu vermessen. Das NV Zentrum ist ein fluoreszenter Defekt im Diamant mit besonderen magneto-optischen Eigenschaften: Der Spin-Zustand des Zentrums ist gekoppelt mit seiner Lumineszenz. Dies erlaubt die Detektion von lokalen magnetischen Feldern durch den Zeeman-Effekt mit Hilfe von Lumineszenzmessungen. Es handelt sich auf Grund seiner atomaren Ausdehnung um eine ideale Probe für die magnetische Bildgebung auf der Nanoskala. Ausserdem kann das NV Zentrum in einem weiten Temperaturbereich eingesetzt werden und es ist photostabil sowie nicht toxisch was eine weite Bandbreite von Anwendungen ermöglicht.

Diese Arbeit berichtet über die Konstruktion eines Scanning NV Magnetometer; die Fabrikation von hochwertigen Diamantsonden mit einzelnen NV Zentren an deren Spitze und die Demonstration von magnetischer Bildgebung von Nanopartikeln sowie zweidimensionalen Strommessungen von Nanoleiternetzwerken:

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Scanning NV Magnetometer gebaut. Das Magnetometer besteht aus vier Hauptkomponenten: Einem Rasterkraftmikroskop (atomic force microscope, AFM) um das NV Zentrum in den drei Raumdimensionen zu positionieren, einem konfokalen Mikroskop um das NV Zentrum optisch zu adressieren und

auszulesen, einem Mikrowellenaufbau um das NV Zentrum zu kontrollieren und letztlich einem Permanentmagnet auf einer in allen Raumrichtungen verschiebaren Präzisionsbühne zur Anwendung von statischen Magnetfeldern für die Ausrichtung des NV Spins. Alle diese Komponenten wurden selbstgebaut einschliesslich der Kontrollsoftware.

Ein weiterer Teil der Arbeit beschäftigte sich mit der Fabrikation von Messsonden. Die erste Generation von Sonden wurde durch das Anfügen von einzelnen Nanodiamanten, welche einzelne NV Zentren enthalten an kommerziell erhältliche AFM-Cantilever hergestellt. Diese Proben haben typische Magnetfeldsensitivitäten von $10 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$ und erreichen eine räumliche Auflösung von 20–100 nm. Um die Zuverlässigkeit, Sensitivität und Ortsauflösung zu verbessern wurde eine zweite Generation von Sonden entwickelt. Dazu wurden säulenförmige Spitzen in CVD gewachsene Diamanten geätzt. NV Zentren wurden durch Ionenimplantation bei einer Tiefe von 5–10 nm unterhalb der Spitze der Diamantsäulen erzeugt. Mit Hilfe dieser neuen Proben können Magnetfeldsensitivitäten von bis zu $10 \text{nT}/\sqrt{\text{Hz}}$ erreicht werden.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konnte die magnetische Bildgebung auf der Nanoskala durch das Visualisieren von magnetischen Feldern von FeCo-Nanopartikeln und Nanostäbchen demonstriert werden. Verschiedene Messprotokolle mit unterschiedlicher Sensitivität und für verschiedene Frequenzbereiche werden vorgestellt. Mit Hilfe der Cantileverbewegung in der vertikalen Richtung konnten dreidimensionale Bilder einer magnetischen Spitze aufgezeichnet werden.

Das Hauptergebnis dieser Arbeit ist die nicht-invasive magnetische Bildgebung von Stromdichten in zweidimensionalen Leitern wie metallischen Nanodrähten und Kohlenstoffnanoröhrchen. Zwei dimensionale Magnetfeldabbildung bei konstanter Scanhöhe oberhalb der Leiter wurden aufgezeichnet. Die erhaltenen Messdaten konnten mit Hilfe von inversen Filtermethoden in Stromdichten umgewandelt werden. Konstante Ströme von wenigen Mikroampere konnten oberhalb einer Baseline-Stromdichte von $2 \times 10^4 \text{ A cm}^{-2}$, mit einer räumlichen Auflösung von 22 nm aufgelöst werden.